


VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000055294	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/000717	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26.01.2005	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 29.01.2004
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder nationale Klassifikation und IPC INV. C07C253/10 C07C253/30		
Anmelder BASF Aktiengesellschaft et al.		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 4 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enthalten, nur in elektronischer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Berichts</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 28.11.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 06.06.2006	
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Slootweg, A Tel. +49 89 2399-8326	



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/000717

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bescheid auf

- ☒ der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde.
- ☐ einer Übersetzung der internationalen Anmeldung in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
 - ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 a) und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4 a))
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 a) und/oder 55.3 a))

2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt*):

Beschreibung, Seiten

1-34 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-12 eingegangen am 28.11.2005 mit Schreiben vom 23.11.2005

Zeichnungen, Blätter

1/2, 2/2 in der ursprünglich eingereichten Fassung

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung: Seite
- ☐ Ansprüche: Nr.
- ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
- ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
- ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).

- ☐ Beschreibung: Seite
- ☐ Ansprüche: Nr.
- ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
- ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
- ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/000717

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche 1-12
	Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit (IS)	Ja: Ansprüche 1-12
	Nein: Ansprüche
Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)	Ja: Ansprüche: 1-12
	Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
BERICHT ZUR PATENTIERBARKEIT
(BEIBLATT)**

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2005/000717

Zu Punkt V.

1. Es wird auf das folgende Dokument verwiesen:

D1 = WO-A-03/011457
D2 = US-A-6 242 633
D3 = US-A-2001/0014647
D4 = FR-A-2 830 530
D5 = DE-A-100 46 025
D6 = US-A-3 496 215

2. Anspruch 1 der Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Adipodinitril durch Hydrocyanierung von 1,3-Butadien, der zwei aufeinanderfolgende Hydrocyanierungen stattfinden, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß ein Katalysator von zumindest ein Verfahrensschritt in den jeweils anderen Verfahrensschritt überführt wird. Die Schritte (a) bis (e) werden genannt und umfassen, das Verfahren.
3. Im Stand der Technik sind die Teilschritte (b), (c) und (e) nicht vorbeschrieben. Anspruch 1 erfüllt somit die Erfordernisse des Art. 33 (2) PCT.
4. Eine Aufgabe der vorliegenden Anmeldung ist es ein integriertes Verfahren zur Herstellung von Adipodinitril durch zweifache Hydrocyanierung von 1,3-Butadien bereit zu stellen, daß eine Zusammenschaltung der Katalysatorkreisläufe der beiden Hydrocyanierungen während der Herstellung von Adipodinitril ermöglicht. Die Lösung ist das Verfahren gemäß Anspruch 1, insbesondere die Schritte (b), (c) und (e) und die Angabe, daß der Katalysator aus mindestens einer der Schritte in den jeweils anderen Verfahrensschritt überführt wird.
5. Obwohl im Stand der Technik Hydrocyanierungsverfahren beschrieben wurden, wurde nie ein Verfahren mit allen technischen Merkmalen von Anspruch 1 beschrieben. Der Vorteil des Verfahrens liegt darin, daß in allen Verfahrensschritten der gleiche Ni(0) Katalysator verwendet werden kann (mit Lewisäure Zusatz in zweiten Hydrocyanierungsschritt), und der Katalysator in den jeweils anderen

Verfahrensschritt überführt werden kann auch von Verfahrensschritt (e) wieder zurück in Schritt (a). Es gibt zu diesem Vorgehensweise nirgendwo im zitierten Stand der Technik einen Hinweis, welches dem Fachmann zu dem vorliegendem Verfahren hätte führen können. Somit erfüllt das Verfahren gemäß Anspruch 1 die Erfordernisse des Art. 33 (3) PCT.

6. Die Ansprüche 2-12 sind vom Anspruch 1 abhängig und erfüllen damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.
7. Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der Beschreibung weder der in den Dokumenten D1-D6 offenbarte einschlägige Stand der Technik noch diese Dokumente angegeben.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Adipodinitril durch Hydrocyanierung von 1,3-Butadien an einem Katalysator, wobei

5

- in einem ersten Verfahrensschritt 1,3-Butadien zu 3-Pentennitril an mindestens einem Nickel(0)-Katalysator hydrocyaniert wird und

10

- in einem zweiten Verfahrensschritt 3-Pentennitril zu Adipodinitril an mindestens einem Nickel(0)-Katalysator unter Zugabe mindestens einer Lewis-Säure hydrocyaniert wird,

dadurch gekennzeichnet,

15

dass zumindest einer der in den jeweiligen Verfahrensschritten

(a) Hydrocyanierung von 1,3-Butadien an mindestens einem Nickel(0)-Katalysator, wobei ein Hydrocyanierungsstrom 1 resultiert, der 3-Pentennitril, 2-Pentennitril, 2-Methyl-2-butennitril, C₉-Nitrile, 2-Methyl-3-butennitril, Methylglutardinitril, den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator, nicht umgesetztes 1,3-Butadien und Reste nicht umgesetzten Cyanwasserstoffs enthält,

20

(b) Abtrennung des mindestens einen Nickel(0)-Katalysators aus dem Hydrocyanierungsstrom 1 unter Erhalt eines Katalysatorstromes 1, der den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator enthält, und eines Hydrocyanierungsstroms 2, der 3-Pentennitril, 2-Pentennitril, 2-Methyl-2-butennitril, C₉-Nitrile und 2-Methyl-3-butennitril enthält,

25

(c) Regeneration des mindestens einen Nickel(0)-Katalysators in dem Katalysatorstrom 1 durch reduktive Nickel-Katalysatorsynthese unter Zugabe von frischem Ligand unter Erhalt eines Katalysatorstroms 2,

30

(d) Hydrocyanierung von 3-Pentennitril an mindestens einem Nickel(0)-Katalysator und in Gegenwart mindestens einer Lewis-Säure, wobei der Nickel(0)-Katalysator und die Lewis-Säure zumindest teilweise aus dem Katalysatorstrom 2 stammen und ein Hydrocyanierungsstrom 3 resultiert, der den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator, Adipodinitril und die mindestens eine Lewis-Säure enthält,

35

40

(e) Abtrennung des mindestens einen Nickel(0)-Katalysators aus dem Hydrocyanierungsstrom 3 durch Extraktion mit einem organischen Lösemittel

unter Erhalt eines Katalysatorstroms 3, der den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator enthält, und eines Produktstromes, der Adipodinitril enthält, wobei der Katalysatorstrom 3 zumindest teilweise in Verfahrensschritt (a) zurückgeführt werden kann,

5

verwendeten Nickel(0)-Katalysatoren zumindest teilweise in den jeweils anderen Verfahrensschritt überführt wird.

10

2. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch die folgenden Verfahrensschritte:

15

(a) Hydrocyanierung von 1,3-Butadien an mindestens einem Nickel(0)-Katalysator, wobei ein Hydrocyanierungsstrom 1 resultiert, der 3-Pentennitril, 2-Pentennitril, 2-Methyl-2-butennitril, C₉-Nitrile, Methylglutarnitril, 2-Methyl-3-butennitril, den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator, nicht umgesetztes 1,3-Butadien und Reste nicht umgesetzten Cyanwasserstoffs enthält,

20

(a') Isomerisierung von 2-Methyl-3-butennitril, das in dem Hydrocyanierungsstrom 1 enthalten ist, zu 3-Pentennitril an mindestens einem Nickel(0)-Katalysator, wobei ein an 2-Methyl-3-butennitril angereicherter und ein an 3-Pentennitril angereicherter Isomerisierungsstrom 1 erhalten wird,

25

(b) Abtrennung des mindestens einen Nickel(0)-Katalysators aus dem Isomerisierungsstrom 1 unter Erhalt eines Katalysatorstromes 1, der den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator enthält, und eines Hydrocyanierungsstroms 2, der 3-Pentennitril, 2-Pentennitril, 2-Methyl-2-butennitril, C₉-Nitrile und 2-Methyl-3-butennitril enthält,

30

(c) Regeneration des mindestens einen Nickel(0)-Katalysators in dem Katalysatorstrom 1 durch reduktive Nickel-Katalysatorsynthese unter Zusatz von frischem Ligand unter Erhalt eines Katalysatorstroms 2,

35

(d) Hydrocyanierung von 3-Pentennitril an mindestens einem Nickel(0)-Katalysator und in Gegenwart mindestens einer Lewis-Säure, wobei der Nickel(0)-Katalysator und die Lewis-Säure zumindest teilweise aus dem Katalysatorstrom 2 stammen und ein Hydrocyanierungsstrom 3 resultiert, der Adipodinitril, den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator und die mindestens eine Lewis-Säure enthält,

40

(e) Abtrennung des mindestens einen Nickel(0)-Katalysators aus dem Hydrocyanierungsstrom 2 durch Extraktion mit einem organischen Lösemittel

unter Erhalt eines Katalysatorstroms 3, der den mindestens einen Nickel(0)-Katalysator enthält, und eines Produktstromes, der Adipodinitril enthält, wobei der Katalysatorstrom 3 zumindest teilweise in Verfahrensschritt (a) zurückgeführt werden kann.

5

3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass in einem zusätzlichen Verfahrensschritt (f) der Hydrocyanierungsstrom 2 aufgetrennt wird und ein an 3-Pentennitril reicher Strom 4 und ein an 2-Methyl-3-butennitril reicher Strom 5 erhalten werden.

10

4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der an 3-Pentennitril reiche Strom 4 in Verfahrensschritt (d) geführt wird.

15

5. Verfahren nach Anspruch 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass der an 2-Methyl-3-butennitril reiche Strom 5 in Verfahrensschritt (a') geführt wird.

20

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass beim ersten Durchgang der Verfahrenssequenz mit Verfahrensschritt (d) unter Einsatz von frischer Lewis-Säure und frischem Nickel(0)-Katalysator und/oder reduktiv regeneriertem Nickel(0)-Katalysator begonnen wird.

25

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass das in Verfahrensschritt (d) hydrocyanierte 3-Pentennitril aus dem Hydrocyanierungsstrom 1 oder dem Isomerisierungsstrom 1 stammt.

30

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass nur ein Teil des Katalysatorstroms 2 für die Hydrocyanierung in Verfahrensschritt (d) verwendet wird und der restliche Teil des Katalysatorstroms 2 als By-pass-Strom 1 direkt in Verfahrensschritt (e) überführt wird.

35

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass nur ein Teil des Katalysatorstroms 2 für die Hydrocyanierung in Verfahrensschritt (d) verwendet wird und der restliche Teil des Katalysatorstroms 2 als By-pass-Strom 1' direkt in Verfahrensschritt (a') überführt wird.

40

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass nur ein Teil des Katalysatorstroms 3 für die Hydrocyanierung in Verfahrensschritt (a) verwendet wird und der restliche Teil des Katalysatorstroms 3 als By-pass-Strom 2 direkt in Verfahrensschritt (a').

11. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass in Verfahrensschritt (c) ein frischer und/oder reduktiv regenerierter Nickel(0)-Katalysator zugeführt wird.
- 5 12. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass das Verfahren kontinuierlich durchgeführt wird.